

中子衍射仪的构造与性能*

安万寿 張煥乔 楊繼廉 朱家瑄 李光定

摘 要

本文描述了一台中子衍射仪,并检验了这台仪器的性能和精确度。在采用 NaCl 单晶体作单色器,选择中子波长为 1.06 埃时,仪器的分辨率 $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 0.026$, 单色中子束强度为 3×10^6 中子/分。利用这台衍射仪测量了 NaCl 单晶体样品和 α -Fe 多晶样品的中子衍射图。

1. 引 言

原子反应堆的出现,提供了强中子束,使中子衍射的实际应用成为可能。迄今,中子衍射工作已有十五、六年的历史了,近年来,它的发展更为迅速。目前,几乎各国供实验用的反应堆上都开展了中子衍射工作。

中子具有波性,中子衍射和X射线衍射原理类似^[1,2],是基于波的干涉效应。中子的能量 E 与波长 λ 的关系由德布罗意公式给出:

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2mE}}, \quad (1)$$

式中 h 是普朗克常数, m 与 v 分别代表中子的质量和速度。

当中子能量较低时,它的波长接近于晶体中原子间的距离,例如当 $E_n = 0.082$ 电子伏时, $\lambda = 1$ 埃,因此低能单色中子与晶体相互作用时,在满足相干条件下就会产生衍射,相干条件用布喇格公式表示:

$$2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = n\lambda, \quad (2)$$

其中, hkl 是产生衍射的晶面的密勒指数, d_{hkl} 是 (hkl) 面的面间距, θ_{hkl} 是相应的布喇格角, n 是反射级数(为整数)。

在衍射方向上,中子的强度与晶体中原子的位置、排列方式以及原子的散射振幅有关。因此,我们能根据衍射峰出现的位置和峰的积分强度来研究物质的结构。

中子衍射与X射线衍射有许多共同点,但也有自己的特点。X射线与核外电子相互作用,散射振幅正比于原子序数 Z ; 中子主要被原子核散射,与核外电子的相互作用微小至可以忽略,散射振幅与 Z 无关。利用这一特点,中子衍射在下列研究中显示出优越性: 第一,在研究含有轻元素的晶体结构时,由于轻元素的X射线的原子散射因子很小,利用X射线衍射不容易,甚至不可能确定轻元素在晶体中的位置。对中子来说,轻元素与重元素的散射振幅相差不多,还有些轻元素的振幅超过重元素,例如:对于碳、铁、钨三种元素,

* 1961年4月11日收到。

X射线的原子散射因子 f_x (当 $\frac{\sin \theta}{\lambda} = 0.5 \text{ 埃}^{-1}$ 时) 分别为 0.48、3.3 和 11.4×10^{-12} 厘米, 而中子的散射振幅, 则分别为 0.66、0.96 和 0.47×10^{-12} 厘米。所以, 要想测定钢铁或其他重金属合金中的碳、氮、氧等轻元素的位置, 使用X射线衍射是不容易做到的, 而采用中子衍射就没有多少困难。同样, 要想测定有机化合物中氢原子的位置, 中子衍射也是很好的方法。第二, 在研究原子序数相近的原子的化合物的结构时, 如过渡族元素的合金 Fe-Co 等, 由于邻近元素X射线的原子散射因子相差不大, X射线衍射无法区别不同的原子, 而邻近原子对中子的散射振幅往往有较大的差别, 所以它们的分辨是比较容易的。在相邻元素合金中, 还可以根据中子衍射图上超结构线的出现来研究合金的有序无序问题。第三, 可以研究与同位素有关的问题。X射线根本不能区别同一元素的不同同位素, 但是同一元素的不同同位素对于中子的散射振幅则不同。

由于中子具有大小为 1.91 核磁子的磁矩, 中子的磁散射截面与核散射截面的数值接近, 甚至比较大, 中子与磁性原子的磁相互作用, 使它成为研究磁性微观结构的一个直接工具。X射线是电磁波, 光子没有磁矩, 不能与磁性原子发生相互作用。中子衍射极重要的应用是研究磁性结构, 当前世界各国在这方面进行的工作很多, 例如: 研究顺磁散射, 得到磁的波形因子; 研究铁磁与反铁磁以及亚铁磁的磁性结构, 原子磁矩的大小与取向等, 还可以得到磁畴结构, 磁畴取向与结晶轴之间关系等宏观特性, 值得提出的, 是当前各国对反铁磁性及铁氧磁物的研究最多, 它的研究无论是对理论或应用都是重要的。

中子衍射也有不足之处, 它比较X射线的强度低十万倍, 因此不能用中子衍射代替X射线衍射, 在有关的问题研究中, 总是首先用X射线得到一切可能得到的数据, 然后再用中子衍射提供X射线不能得到的资料, 二者互相补充, 便可全面地解决我们所研究的问题。

最近, 中子衍射技术不断发展, 除了对粉末样品研究之外, 现已大量对单晶样品进行研究, 并提高其精确度。此外, 引入温度控制(特别是低温), 磁场和极化中子束作磁性结构研究, 提供了更丰富更可靠的知識。

II. 中子衍射仪的构造

为了开展中子衍射工作, 我们在反应堆旁建立了中子衍射仪。中子衍射仪主要的部件有: (一) 准直系统; (二) 单色器; (三) 晶体谱仪; (四) 探测与记录系统; (五) 防护。

中子衍射仪的构造如图 1 所示。由反应堆水平突

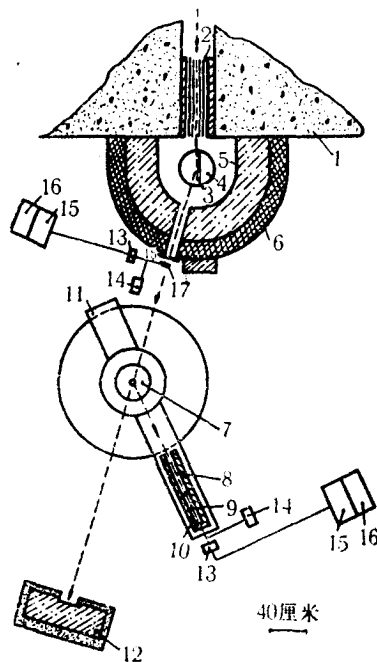


图1 中子衍射仪的构造示意图

1. 反应堆防护; 2. 第一准直器;
3. NaCl 单晶体; 4. 晶体台;
5. 含硼石蜡防护; 6. 铅砖; 7.
样品及样品台; 8. 第三准直器;
9. BF₃ 计数管; 10. 计数管防护;
11. 反承重; 12. 扭摆器; 13.
阴极跟随器; 14. 高压; 15.
放大器; 16. 定标器; 17. 监守
器; 18. B₄C 光闸

驗孔道引出的方向混亂的“多色”中子束經過第一准直器准直,以 θ 角入射到單色器上,經衍射式的反射,得到單色中子束,它通過第二准直器打到樣品上,在空間產生衍射花樣,然後用測角儀和探測器測定各個衍射花樣的強度和空間分布。下面分別介紹中子衍射儀的幾個主要部件。

(一) 准直系統^[3,4,5]:第一個准直器在反應堆水平實驗孔道內,它的長度為 120 厘米,高度 4.2 厘米,總寬度 4.5 厘米,被銅片分成七個平行狹縫,每一個狹縫寬 0.6 厘米,水平發散角 $\alpha_1 = 17.3'$,經實驗檢驗, α_1 實為 $15.6'$ 。第二准直器放在單色器外圍的防護層內,我們曾設計 $\alpha_2 = 30'$ 的一個准直器,由於 NaCl 單晶單色器的嵌鑲結構較小,由單色器上反射的中子束的發散角不大,用第二准直器後,對改進譜綫寬度效果不大,而強度損失較大,故未用第二准直器,只在單色束出口處放了一個 B_4C 光柵來減少本底。第三准直器是單縫的,長 36 厘米,開口 1.0×3.2 厘米,放在探測器前。

(二) 單色器:一般單色器採用鹵素金屬化合物單晶: LiF、KBr 和 NaCl,或用金屬單晶 Pb、Cu 等,後者比前者反射強度大 2—3 倍。我們初步選用的是 NaCl 單晶,其大小是:寬 11 厘米,高 8 厘米,厚約 1 厘米。晶體圖案分布曲綫的半寬度 $\beta = 6.2'$ 。我們選用 NaCl 的 (200) 面作反射面。晶體切割時,使切割面與 (200) 面構成約 6° 的角,這樣可以使反射束寬度只有入射束寬度的 $1/3$ 左右。由第一准直器出來的束寬 4.5 厘米,晶體能接受的寬度被晶體本身的寬度與角度決定,這寬度為 $\frac{11}{\csc\theta} \sim 2.1$ 厘米,估計變窄後的反射束

寬約 0.7 厘米,實驗測量與預計一致。

單晶體放在晶體台上,晶體台可以轉動,向前向後移動,上升下降與調整傾斜度,使晶體調到所需要的位置。

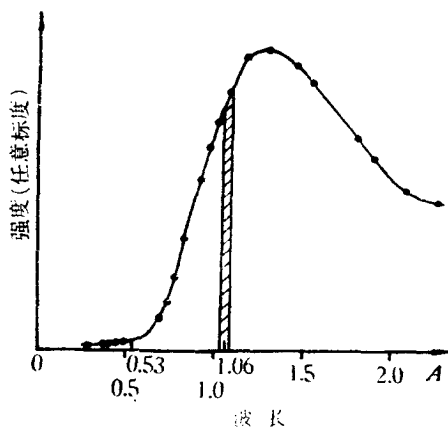


圖 2 由 NaCl 晶體反射的中子按波長分布曲綫

單晶體的位置是這樣選擇的,根據反應堆引出的波譜(圖 2 所示)來看,為了得到大的強度而次級影響又不大,應該選用波長在 1 埃附近的中子,這樣, θ 差不多是 10.5° 。

(三) 晶體譜儀:我們所用的晶體譜儀是與中國科學院光學精密儀器研究所共同設計,並由他們加工製成的,這台晶體譜儀曾進行過能譜與截面測量工作。它具有優良的機械性能,改裝成中子衍射儀,它的精確度是足夠的。

譜儀的轉角範圍 $-18^\circ < \theta < +130^\circ$ 。譜儀轉角是用兩個搖盤進行,大搖盤(粗動)每轉一周,長臂(放計數管用的,見圖 1)轉 4° ,小搖盤每轉一周長臂轉 $3'$ 。樣品台可以單獨旋轉,也可以與長臂 1:2 聯動,1:2 精確度在 150° 範圍內累積偏差 $0.83''$,最大偶然偏差 $\pm 5.2''$ 。計數管與樣品的位置分別用兩對顯微鏡讀出,能直接讀到 $6''$,讀角精確度正向 $10.4''$,反向 $18.3''$ 。重複性:正向 $7.2''$,反向 $6.0''$ 。

為了使工作人員少受輻射的傷害,長臂轉動由遠距離操縱。在小搖盤上裝一個 30 瓦的萬用馬達(能調速與反向轉動),它帶有一個減速比為 1:100 的齒輪減速箱。

谱仪的轉角传递系統在远距离操縱中由一对自整角器(一个发送器与一个接收器)組成。将发送器装在谱仪的大搖盘上,通过电纜綫与实验室的接收器相連。接收器上装一个刻度盘,能讀出 0.5° , 相应于計数管的位置可以讀到 $20''$, 这已經够一般实验的要求了。

(四) 探测与记录系統: 中子探测器是用 CHM-7 型 BF_3 正比計数管, 管长 60 厘米, 直径 3 厘米, 含 $\text{B}^{10}90\%$, 薄窗, 計数效率 90% 以上, 坪寬 300 伏, 工作电压 2300 伏, 計数管本底 < 3 脉冲/分。

由計数管出来的訊号經阴极跟随器輸入到放大器, 放大后的訊号被定标器记录下来。放大器是带有甄别器的 100 型綫性脉冲放大器, 定标器是一万进位的 $\Phi\text{ЛOKC}$ 。放大器与定标器均放在实验室内, 用电纜綫与放在計数管旁的阴极跟随器連接。

为了监守反应堆中子通量变化, 在单色中子束經過的途中放一支小型 BF_3 計数管作监守器用, 所用的电子学仪器与上面講的相同。

(五) 防护: 由反应堆引出的中子具有連續譜, 而我們选用的只是一个窄带(在图 2 上用斜綫表示的部分)。大部分中子透过单色器或被单色器散射到各个方向, 这些中子必須吸收掉, 否則不仅对人体健康有影响, 而且这些中子被其他物体散射进入計数管, 增加本底, 对实验有影响, 因此中子的防护是一个重要的問題。

反应堆出来的粒子射綫主要有下列几种: γ 射綫, 快中子, 慢中子。

我們采用 20 厘米厚的鉛砖吸收 γ 射綫已足够, 防护体外的 γ 剂量远小于允許剂量。

对于中子, 我們用混有硼酸的石蜡来防护, 石蜡中含有大量的氢, 是很好的慢化剂, 硼的热中子吸收截面很大。我們在单色器周围用 35 厘米厚的含硼石蜡层, 在正对反应堆孔道处, 由于直穿中子束很強, 而且其中有不少快中子, 因此在鉛砖外又加了 15 厘米厚的含硼石蜡以加强防护。

第三准直器与計数管一起用一个防护筒装着, 以减少样品非相干散射及反应堆旁本底对計数的影响。防护筒的直径 40 厘米, 长 100 厘米, 里面装的也是含硼石蜡, 計数管用一层鋁片包着, 鋁对慢中子吸收截面很大, 可以減輕防护重量。

在单色束方向放了一个大捕捉器, 里面灌有鉄砂与含硼石蜡, 捕捉器后的剂量几乎等于零, 工作人員可以在捕捉器后面安全走动。

III. 中子衍射仪性能的鑑定

中子衍射仪的性能主要是: (一) 分辨率 $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$; (二) 单色中子束的強度; (三) 次級成分;

(四) 衍射譜綫的強度、半寬度与本底。

(一) 分辨率 $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$: 如我們所选用的中子波长为 λ , $\Delta\lambda$ 就表示实际^{測得}中子波长^的相对^{误差}。 $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ 越小, 表示仪器的分辨率越好。这个数值是被准直器引出的中子束的最大水^平发散角 α_1 及单色器所用单晶体的嵌鑲結構 β 所決定。

由布喇格公式

$$2d \sin \theta = n\lambda,$$

得

$$2d \cos \theta \Delta \theta = n \Delta \lambda, \quad (3)$$

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \cot \theta \Delta \theta, \quad (4)$$

其中

$$\Delta \theta = (\alpha_1^2 + \beta^2)^{\frac{1}{2}}.$$

$\Delta \theta$ 可由实验测量, 方法是将计数管固定在 2θ 的位置, 然后将 NaCl 单晶体在 θ 角附近旋转, NaCl 晶体在不同角度的反射强度在图 3 上画出. 曲线的半宽度即是 $\Delta \theta$, 它等

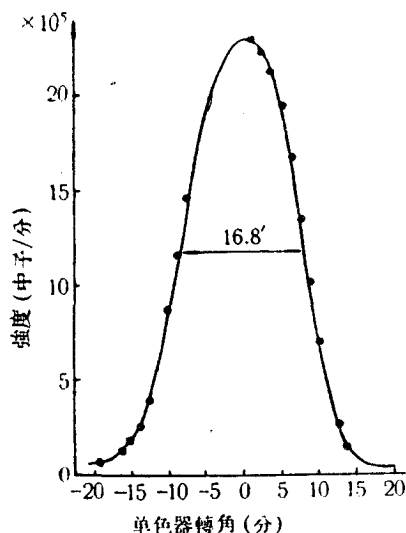


图 3 NaCl 晶体单色器的反射曲线

于 $16.8'$, 我们选用的 θ 为 $10^\circ 52'$, 相应的中子波长 $\lambda = 1.06$ 埃, 将 θ 和 $\Delta \theta$ 的值代入 (4) 式, 得 $\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = 0.026$, 波带的宽度 $2\Delta \lambda = 0.052$ 埃.

(二) 单色中子束的强度: 在我们衍射仪的几何配置下, 计数管离单色器 310 厘米, 计数管开口 3.2×1.0 厘米, 当计数管放在单色束的中心时, 计数强度为 3×10^6 中子/分.

(三) 次级成分: 当波长 $\lambda_1 = 1.06$ 埃的中子在 NaCl 晶体 (200) 面上产生衍射时, $\lambda_2 = \frac{\lambda_1}{2} = 0.53$ 埃的中子以同样角度在 (400) 面上产生次级反射, 因此在波长为 λ_1 的单色中子束中掺杂有波长为 λ_2 的次级反射中子. 由中子波谱可以看出, 波长为 0.53 埃的中子强度与波长为 1.06 埃的中子强度比

较是很小的, 不超过 4%. 次级反射强度除依赖于波谱之外, 还与 NaCl 晶体 (200) 面及 (400) 面的反射系数有关. 我们曾用一块同样的 NaCl 单晶体作第二晶体 (即样品) 得到衍射曲线 (图 4), 波长 λ_1 的中子在 (200) 面上产生衍射的谱线最大强度为 155×10^3 中子/分, 波长为 λ_2 的中子在 (200) 面上衍射的最大强度 700 中子/分, 它的影响不到 0.5%.

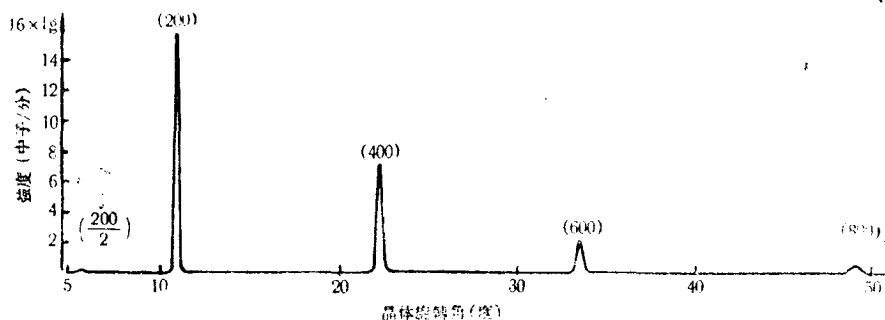


图 4 NaCl 单晶体的衍射曲线

(四) 衍射谱线的强度、半宽度及本底水平: 在中子衍射图上, 衍射谱线的强度与单色束的强度及样品有关, 大的强度可以得到高精度与缩短测量时间. 衍射谱线的半宽

度与准直系统的选择(即 $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ 的大小)和单色器的嵌镶结构 β 等有关,由谱线宽度可以确定两个衍射峰相隔多远才能在测量中分辨出来,半宽度越窄,分辨性能越好。

我們曾測量了 α -Fe 多晶样品的衍射曲线(图 5)。样品装在直径 1.2 厘米,高 5 厘米,壁厚 0.05 厘米的铝盒中,在样品位置,中子束高 3.7 厘米,宽 1.7 厘米。为了便于说明,在下表中列出了 α -Fe 衍射曲线的主要数值。

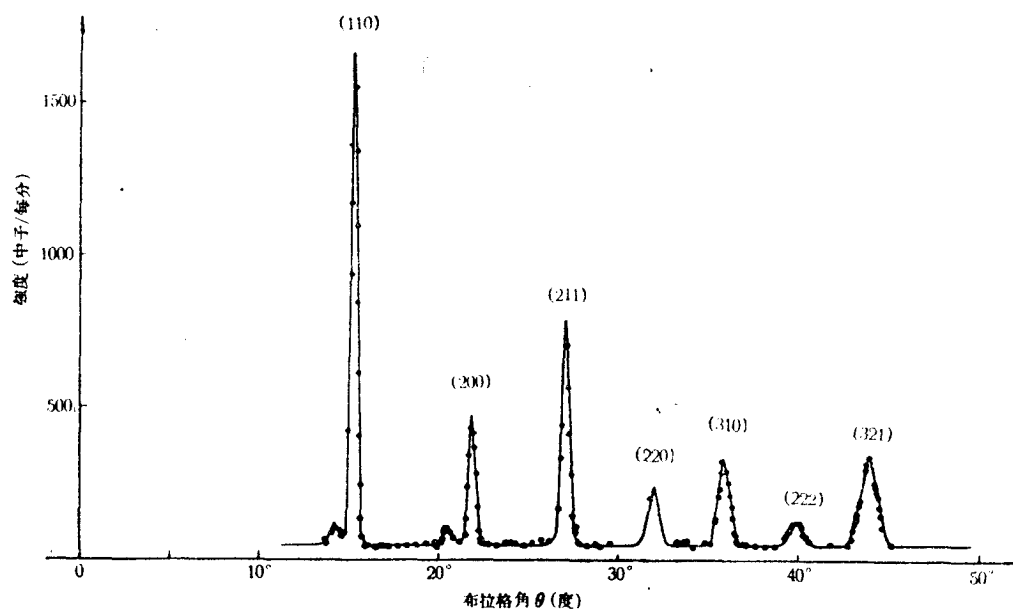


图 5 α -铁的衍射曲线

表 1

hkl	谱线半宽度	谱线的最大强度 (中子/分)	谱线的相对强度	
			实验值	计算值*
110	26'	1670	100	100
200	30'	480	26	27
211	32'	780	64	70
220	36'	250	21	30
310	45'	340	33	46
222	54'	130	12	12
321	64'	320	49	60

上面在防护问题中,我們曾谈到一部分本底来源于多色中子在单色器及其他物体上的漫散射。此外,样品的非弹性散射、非相干散射以及中子在样品中的多次散射引起的本底。在 α -Fe 衍射曲线中,本底强度是 40—50 中子/分。

由 NaCl 单晶样品及 α -Fe 多晶样品的中子衍射图的结果证明这台中子衍射仪是可以用来进行一般晶体结构和磁性结构等问题的研究。

本工作是在戴传曾先生指导下进行的,我們向他表示感谢。

参 考 文 献

- [1] G. E. Bacon: Neutron Diffraction, (1955) (有俄譯本).
- [2] Н. А. 弗拉索夫: 中子, 397—429 頁, 高等教育出版社出版, 1959 年.
- [3] W. Soller: *Phys. Rev.* **24**, (1924) 158.
- [4] V. L. Soller 等: *R. S. I.* **27**, (1956) 27.
- [5] G. Caglioti 等: *Nucl. Instr.* **3**, (1958) 183.
- [6] Shull, C. G. and Kochler, W. C.: *Phys. Rev.* **84**, (1951) 912.
- [7] В. Н. Быков 等: *Кристаллография*, **2**, 5 (1957), 634—638.

УСТРОЙСТВО И ХАРАКТЕР НЕЙТРОННОГО ДИФФРАКТОМЕТРА

Ан Ван-шоу, Чжан Хуан-цзо, Ян
Ци-лень, Чжу Дя-шань, Ли Гуан-дин

Резюме

Настоящая статья описывает о нейтронном диффрактометре и результатах проверки его характера работы и точности. В качестве монохроматора применяется монокристалл NaCl. Длина волны монохроматизированного пучка нейтронов равна $1.06 \text{ \AA}$. При этом прибор имеет разрешающую способность $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 0.0\overset{26}{\cancel{33}}$. Интенсивность монохроматизированного пучка нейтронов — 3×10^6 нейтронов/мин. На данном приборе были получены диаграммы дифракции на монокристалле NaCl и на образце порошков от $\alpha\text{-Fe}$.